

AP

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 04-028771

(43)Date of publication of application : 31.01.1992

(51)Int.Cl.

C09C 3/06

C09C 1/40

C09C 1/42

(21)Application number : 02-132724

(71)Applicant : MERCK JAPAN KK

(22)Date of filing : 24.05.1990

(72)Inventor : NOGUCHI TAMIO
WARATANI YUMIKO

(54) BLUISH GREEN PIGMENT AND ITS PRODUCTION

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain the subject pigment, excellent in color tone and useful as cosmetics, etc., by adding an aqueous solution of an Mg salt, etc., and a basic aqueous solution to an aqueous suspension of flaky fine powder, coprecipitating metallic hydroxides, etc., on the surface of a fine powdery substrate, separating the formed product by filtration, and burning the resultant product.

CONSTITUTION: An aqueous solution containing an Mg salt, a Ca salt, a Co salt and titanium salt (e.g. a chloride) dissolved therein and a basic aqueous solution (e.g. an aqueous solution of an alkali metallic carbonate) are added to an aqueous suspension of a fine flaky powder (e.g. mica) while being heated and stirred, and hydroxides and hydrides of the aforementioned metals, or together with Ca carbonate (the coating amount is preferably 10-60wt.% based on the total pigment), are coprecipitated on the surface of the flaky fine powdery substrate. The resultant product is then separated by filtration, washed with water and burned to afford the objective pigment.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

USPS EXPRESS MAIL
EV 511 024 032 US
SEPTEMBER 30 2004

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

⑫ 公開特許公報(A) 平4-28771

⑬ Int. Cl.¹

C 09 C 3/06
1/40
1/42

識別記号

PBT
PBB
PBA

庁内整理番号

6904-4J
6904-4J
6904-4J

⑭ 公開 平成4年(1992)1月31日

審査請求 未請求 請求項の数 5 (全7頁)

⑮ 発明の名称 青緑色顔料及びその製造法

⑯ 特 願 平2-132724

⑰ 出 願 平2(1990)5月24日

⑱ 発 明 者 野 口 民 生 福島県いわき市常磐上湯長谷町湯台堂135番地の77

⑲ 発 明 者 巖 谷 由 美 子 福島県いわき市三和町上永井字宿下79番地

⑳ 出 願 人 メルク・ジャパン株式 東京都港区虎ノ門2丁目6番4号 第11森ビル
会社

㉑ 代 理 人 弁理士 南 孝 夫 外1名

明 細 書

1. 発明の名称

青緑色顔料及びその製造法

2. 特許請求の範囲

- (1) 薄片状微粉末を基質として、該基質にマグネシウム、カルシウム、コバルトおよびチタンの各酸化物からなる金属の複合酸化物が全顔料基算で5〜70重量パーセントの被覆量で被覆されていることを特徴とする青緑色顔料。
- (2) 上記の基質が雲母、タルク、カオリン、セリサイトまたは合成雲母から選ばれた薄片状微粉末である請求項1記載の顔料。
- (3) 上記の基質が、酸化チタンが被覆された薄片状微粉末雲母である請求項1記載の顔料。
- (4) 上記の基質が、酸化鉄水化物もしくは酸化鉄が被覆された薄片状微粉末雲母である請求項1記載の顔料。
- (5) 薄片状微粉末を水に懸濁させた懸濁液に対し、マグネシウム塩、カルシウム塩、コバルト塩およびチタン塩を溶解させた水溶液と、

塩基性水溶液とを加熱攪拌下に加え、薄片状微粉末基質の表面に、これらの金属の水酸化物、酸化物水化物、もしくはカルシウムの炭酸塩とともに共沈させ、生成物を分別し、水洗し、焼成することを特徴とする請求項1記載の顔料の製造法。

3. 発明の詳細な説明

〔技術分野〕

本発明は、彩度、明度等の色調にすぐれ、かつ、安全性並びに化学的安全性にもすぐれた金属の複合酸化物で被覆された青緑色顔料およびその製造法にかかるものであり、化粧料、塗料、インキ、プラスチック等の着色剤として有用な青緑色顔料を提供することを目的とするものである。

〔背景技術〕

従来の緑色系または青緑色系薄片状顔料としては、薄片状雲母もしくは青、緑の干渉色を有する酸化チタン被覆薄片状雲母の表面に紺青、群青顔料や酸化クロムなどの青色、緑色顔料が

被覆されたもの、および薄片状粉体の表面にチタン、コバルト、リチウムの各酸化物などからなる金属の複合酸化物が被覆されている着色薄片状粉体などが知られている。

一方、コバルト(Ⅱ)イオンを含有する緑色顔料としては、酸化コバルトと酸化チタンとの粉末を混合した後、900℃以上の高温で焼成して得られるチタニウムスピネル系顔料、例えばチタン酸コバルト($\text{Co}_2\text{TiO}_4 \cdot \text{CoTiO}_3$)が、知られており、またその色調を改良したものとして、チタン酸リチウムコバルト($\text{Li}_2\text{CoTi}_3\text{O}_8$)や $\text{CaTiO}_3-\text{CoTiO}_3-\text{TiO}_2$ の組成を有するものなどが知られている。

また、青緑色系顔料としては、酸化マグネシウムと酸化チタンとを用いて、約1300℃の高温下でスピネル構造を有するチタン酸マグネシウム(MgTiO_3)を合成した後、酸化コバルトを焼成下でドーブした化学式 $\text{XCoO}(2-\text{X})\text{MgOTiO}_2$ (Xが0.8~1.0、主波長λ。: 491~500nm)を有する顔料が知られている。

程を経なければならぬということにより、顔料価格は一層高いものとならざるを得ないものである。

また、前記の酸化チタン被覆雲母の表面に紺青を被覆させたものは、紺青がアルカリ溶液中でシアンを発生しながら退色すること、あるいは、200~300℃の熱で分解退色するなどという欠点があり、同じように、紺青を被覆したものは、酸性溶液中で硫化水素ガスを発生するなどの化学的安定性に問題がある。さらに酸化クロムを被覆したものについてはクロムの安全性に問題があることから近年その使用が制限される傾向にある。

[発明の開示]

本発明者らは、上記従来技術の欠点ないし問題点を改良すべく鋭意研究を重ねた結果、薄片状微粉末を基質として、その表面をチタン、コバルト、マグネシウムおよびカルシウムの各酸化物からなる金属の複合酸化物で被覆することにより、明度、彩度が高く、かつ安全性並びに

ところが、薄片状のカオリン、タルク、セリサイトまたは雲母などを基質として、その表面にコバルト(Ⅱ)イオンを含有するチタニウムスピネル系顔料を被覆しようとする場合には、これらの薄片状基質と酸化コバルト、酸化マグネシウムおよび酸化チタンとを混合した後、高温で焼成すると、薄片状基質とこれらの酸化物とが焼結固化するために、所望の顔料が得られなかった。

また、緑色系顔料としては、チタン、コバルトおよびリチウムの各酸化物からなる金属の複合酸化物で被覆した薄片状粉体が知られているが(特開昭63-43963)、この顔料はリチウムが地球資源としてきわめて少なく一般工業原料として高価であるうえ、更にその顔料を製造するには酸化チタン水化物と酸化コバルト水化物とを薄片状粉体の表面に湿式法により析出させた後、該析出物を水洗、乾燥させた粉体とリチウム化合物とを混合し、更に高温で焼成するという、湿式法と乾式法とを併用する複雑な製造工

安定性の良好な青緑色顔料が、簡便な操作により、かつ安価に得られることを見出した。本発明は、かかる知見にもとづいてなされたものである。

したがって、本発明は、薄片状微粉末を基質として、該基質にマグネシウム、カルシウム、コバルトおよびチタンの各酸化物からなる金属の複合酸化物が全顔料基質で5~70重量パーセントの被覆量で被覆されていることを特徴とする青緑色顔料およびその製造法、すなわち、薄片状微粉末を水に懸濁させた懸濁液に対し、マグネシウム塩、カルシウム塩、コバルト塩およびチタン塩を溶解させた水溶液と、塩基性水溶液とを加熱攪拌下に加え、薄片状微粉末基質の表面に、これらの金属の水酸化物、酸化物水化物、もしくはカルシウムの炭酸塩とともに共沈させ、生成物を分別し、水洗し、焼成することとを特徴とする青緑色顔料の製造法を提供するものである。

本発明を以下に詳細に説明する。

まず、本発明にかかる青緑色顔料の製造法につき、詳細に説明する。雲母、タルク、カオリン、セリサイトおよび合成雲母などの薄片状微粉末を水に懸濁させ、その懸濁液に対し、マグネシウム塩、カルシウム塩、コバルト塩およびチタン塩を溶解させた水溶液、すなわち、マグネシウム(Ⅱ)イオン、カルシウム(Ⅱ)イオン、コバルト(Ⅱ)イオンおよびチタン(Ⅳ)イオンの金属イオンを含む水溶液と塩基性水溶液とを併せ用いて加熱攪拌下に加え、その懸濁液のpHを1.0～2.5に調整して微量のマグネシウム(Ⅱ)イオン、カルシウム(Ⅱ)イオン、コバルト(Ⅱ)イオンを含む酸化チタン水化物を薄片状微粉末基質の表面に被覆させ、次いで塩基性水溶液を徐々に加えて、その懸濁液のpHを2.5から7.0とした後、更に塩基性水溶液を加えてpHを7.0～10.0にすることにより、上記酸化チタン水化物被覆薄片状基質の表面に、酸化コバルト水化物、水酸化カルシウムと水酸化マグネシウムとを共沈させ、コバルト(Ⅱ)イ

オンを完全に酸化コバルト水化物として薄片状微粉末基質の表面に被覆させる。

上記塩基性水溶液として、アルカリ金属炭酸塩や尿素などを用いることにより、前記の酸化チタン水化物被覆薄片状基質の表面に炭酸コバルト、炭酸カルシウム、炭酸マグネシウムなどの各炭酸塩を共沈させることも可能である。

そして、上記の各金属の水酸化物および酸化物水化物、またはそれらと炭酸塩を共沈させた薄片状基質を分別し、水洗した後、焼成することにより、マグネシウム、カルシウム、コバルトおよびチタンの各酸化物からなる金属の複合酸化物で被覆された所望の青緑色顔料が効率良く得られる。

本発明に係る顔料製造における原料として用いる薄片状微粉末の例としては、カオリン、タルク、セリサイト、雲母、パイロフィライトなどの粘土鉱物および合成雲母があげられ、また一般に市販されている、酸化チタン被覆雲母顔料や酸化鉄被覆雲母顔料などもそのまま、原料

として使用することができる。

前記のマグネシウム塩の例としては、塩化マグネシウム、臭化マグネシウム、硫酸マグネシウム、硝酸マグネシウムなどであげられ、同、カルシウム塩としては、塩化カルシウム、硝酸カルシウムなど、また、コバルト塩としては、塩化コバルト、硫酸コバルト、硝酸コバルトなど、また、チタン塩としては、四塩化チタン、硫酸チタニルなど、各金属の無機塩が好適なものとしてあげられる。

また、これら、マグネシウム塩、カルシウム塩、コバルト塩、チタン塩などの他の例としては、チタンテトラプロポキシド： $\text{Ti}(\text{C}_3\text{H}_7\text{O})_4$ などのアルコキシドや、各金属の有機酸との塩なども使用することができる。これらの金属イオンを水酸化物および酸化物水化物として薄片状基質の表面に被覆させる際にpH調整のために用いる前記の塩基性化合物の例としては、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、水酸化アンモニウムなどの水酸化物、炭酸ナトリウム、炭酸カ

リウム、炭酸アンモニウムなどの炭酸塩あるいはこれらの炭酸水素塩があげられる。また水溶液中で加熱することにより加水分解し、アンモニアと二酸化炭素に分解する尿素などもあげられる。特に尿素を使用する場合には、加水分解により生成する二酸化炭素がカルシウム(Ⅱ)イオンと結合して炭酸カルシウムとなり、他の酸化コバルト水化物、水酸化マグネシウムや酸化チタン水化物と共沈するため、分散性の良い顔料が得られる。

また、薄片状微粉末基質としては、市販の二酸化チタン被覆雲母系顔料や酸化鉄被覆雲母系真珠顔料(例えば、Merck社製のIriodin, TitaniumまたはColorona)を用いた場合は、反射色、透過色ともに色相が変わり、従来にない二色性の真珠顔料が得られる。すなわち、例えば反射色が赤色で透過光が緑色である二酸化チタン被覆雲母顔料に前記金属の複合酸化物を被覆すると反射色が青赤色で透過色が黄緑色を呈するものとなる。

本発明にかかる青緑色顔料は、薄片状微粉末を基質として、その表面に被覆するチタン、コバルト、マグネシウムおよびカルシウム等の各酸化物の粒子形態、被覆量、加熱温度、加熱時間など種々の条件の選択およびその組み合わせによって青緑色から緑色にあたる種々の色調を有する顔料が得られる。

薄片状基質の表面に被覆する上記金属の複合酸化物の被覆量は、顔料全体の5～70重量パーセント、好ましくは10～60重量パーセントである。被覆量が5重量パーセント未満では彩度の良いものが得られず、70重量パーセントを超えると、酸化物が生成し、良質のものが得られない。

前記の薄片状基質の表面にチタン、コバルト、マグネシウムおよびカルシウムの各水酸化物および酸化物水化物またはそれらと炭酸塩とを被覆した後、焼成すると最終的には各金属の酸化物が生成するがその際の焼成温度は500～1300℃、好ましくは700～1000℃で焼成時間は0.5

～5.0時間である。

上記条件で焼成した場合、チタン、コバルト、マグネシウムおよびカルシウムの各酸化物は固溶体状の複合酸化物とも称すべき状態を形成するが条件によっては各金属単独の酸化物がこのような複合酸化物と併存して生成する場合もある、本発明において、複合酸化物と称する用語は、このような場合も包含されたものを云う。

本発明にかかる青緑色顔料における金属の複合酸化物の組成比は、通常、酸化物としてチタン1モルに対しコバルト0.3～1.0モル、マグネシウム0.05～0.20モルおよびカルシウム0.05～0.20モルとなるように製造時の各原料の配合比を定めることによってもたすことができる。

本発明にかかる青緑色顔料は、以上に詳述した如き製造法にもとづき得られるものであり明度、彩度等の色調にすぐれ、かつ無毒性で、耐光性、耐熱性、耐薬品性などの諸特性にもすぐれ、化粧品、塗料、プラスチック、インキおよびセラミックス製品の着色剤として産業上利用

価値の大いなるものである。

以下に実施例を掲げ本発明を具体的に説明するが本発明はこれらの具体例により限定されるものではない。

実施例 1

水1200mlに、粒子径10～60 μ mの白雲母微粉末120gを加えて調製した懸濁液を95℃に加熱し、この懸濁液に、32重量パーセント四塩化チタン水溶液295.5g塩化コバルト六水和物31.6g、塩化マグネシウム六水和物5g、および塩化カルシウム二水和物3.7gを水300mlに溶解させた水溶液を、10重量パーセント苛性ソーダ水溶液でその懸濁液のpHを1.0～2.5に調整しながら、加熱攪拌下、7時間で加える。上記の金属塩水溶液を全て加えた後、10重量パーセント苛性ソーダ水溶液を用いてさらにpHを7～10としこれらの金属の水酸化物および酸化物水化物を白雲母微粉末の表面に共沈させ、得られた生成物を分別し、水洗し、105～110℃で8時間乾燥した。この生成物を800℃で1時間焼成

することにより、白雲母微粉末表面がこれらの金属の複合酸化物で被覆された青緑色顔料を得た。

実施例 2

水1200mlに、粒子径1～20 μ mのセリサイト微粉末120gを加えて調製した懸濁液を95℃に加熱し、この懸濁液に、32重量パーセント四塩化チタン水溶液295.5g塩化コバルト六水和物31.6g、塩化マグネシウム六水和物5g、および塩化カルシウム二水和物3.7gを水300mlに溶解させた水溶液を、10重量パーセント苛性ソーダ水溶液でその懸濁液のpHを1.0～2.5に調整しながら、加熱攪拌下、7時間で加える。上記の金属塩水溶液を全て加えた後、10重量パーセント苛性ソーダ水溶液を用いてさらにpHを7～10としこれらの金属の水酸化物および酸化物水化物をセリサイト微粉末の表面に共沈させ、得られた生成物を分別し、水洗し、105～110℃で8時間乾燥した。この生成物を800℃で1時間焼成することにより、セリサイト微粉末の

表面がこれらの金属の複合酸化物で被覆された青緑色顔料を得た。

実施例 3

水700mlに、粒子径1~70 μ mの合成雲母微粉末70gを加えて調製した懸濁液を95℃に加熱し、この懸濁液に、32重量パーセント四塩化チタン水溶液110g、塩化コバルト六水和物10g、塩化マグネシウム六水和物2g、および塩化カルシウム二水和物2gを水150mlに溶解させた水溶液を、10重量パーセント苛性ソーダ水溶液でその懸濁液のpHを1.0~2.5に調整しながら、加熱攪拌下、3時間で加える。上記の金属塩水溶液を全て加えた後、10重量パーセント苛性ソーダ水溶液を用いてさらにpHを7~10とし、これらの金属の水酸化物および酸化物水化物を白雲母微粉末の表面に共沈させ、得られた生成物を分別し、水洗し、105~110℃で8時間乾燥した。この生成物を800℃で1時間焼成することにより、合成雲母微粉末の表面がこれらの金属の複合酸化物で被覆された青緑色顔料を得

た。

実施例 4

水1200mlに、粒子径2~70 μ mのタルク微粉末120gを加えて調製した懸濁液を95℃に加熱し、この懸濁液に、32重量パーセント四塩化チタン水溶液98.5g、塩化コバルト六水和物31.6g、塩化マグネシウム六水和物3.5g、および塩化カルシウム二水和物2.5gを水100mlに溶解させた水溶液を、10重量パーセント苛性ソーダ水溶液でその懸濁液のpHを1.0~2.5に調整しながら、加熱攪拌下、2時間で加える。上記の金属塩水溶液を全て加えた後、10重量パーセント苛性ソーダ水溶液を用いてさらにpHを7~10としこれらの金属の水酸化物および酸化物水化物をタルク微粉末の表面に共沈させ、得られた生成物を分別し、水洗し、105~110℃で8時間乾燥した。この生成物を800℃で1時間焼成することにより、タルク微粉末の表面がこれらの金属の複合酸化物で被覆された青緑色顔料を得た。

実施例 5

水1200mlに、粒子径12 μ m以下のカオリン微粉末（勝光山鉱業所製N-clay）120gを加えて調製した懸濁液を95℃に加熱し、この懸濁液に、32重量パーセント四塩化チタン水溶液98.5g、塩化コバルト六水和物31.6g、塩化マグネシウム六水和物3.5g、および塩化カルシウム二水和物2.5gを水100mlに溶解させた水溶液を、10重量パーセント苛性ソーダ水溶液でその懸濁液のpHを1.0~2.5に調整しながら、加熱攪拌下、2時間で加える。上記の金属塩水溶液を全て加えた後、10重量パーセント苛性ソーダ水溶液を用いてさらにpHを7~10としこれらの金属の水酸化物および酸化物水化物をカオリン微粉末の表面上に共沈させ、得られた生成物を分別し、水洗し、105~110℃で8時間乾燥した。この生成物を850℃で1時間焼成することにより、カオリン微粉末の表面がこれらの金属の複合酸化物で被覆された青緑色顔料を得た。

実施例 6

水1200mlに、青色の反射色および黄色の透過色を有する酸化チタン被覆雲母微粉末（MERCK社製Iridin 225）120gを加えて調製した懸濁液を95℃に加熱し、この懸濁液に32重量パーセント四塩化チタン水溶液98.5g、塩化コバルト六水和物31.6g、塩化マグネシウム六水和物3.5g、および塩化カルシウム二水和物2.5gを水100mlに溶解させた水溶液を、10重量パーセント苛性ソーダ水溶液でその懸濁液のpHを1.0~2.5に調整しながら、加熱攪拌下、2時間で加える。上記の金属塩水溶液を全て加えた後、10重量パーセント苛性ソーダ水溶液を用いてさらにpHを7~10としこれらの金属の水酸化物および酸化物水化物を酸化チタン被覆雲母微粉末の表面に共沈させ、得られた生成物を分別し、水洗し、105~110℃で8時間乾燥した。この生成物を850℃で1時間焼成することにより、酸化チタン被覆雲母微粉末の表面がこれらの金属の複合酸化物で被覆された、光輝性を有する青緑色顔料を得た。またこの顔料は、彩度

の高い青緑色の反射色を有し、その透過色は黄赤色を有していた。

実施例 7

水1200mlに、金色の反射色および青色の透過色を有する酸化チタン被覆雲母微粉末 (MERCK社製 Iriodin 205) 120gを加えて調製した懸濁液を95℃に加熱し、この懸濁液に、32重量パーセント四塩化チタン水溶液98.5g、塩化コバルト六水和物31.6g、塩化マグネシウム六水和物3.5g、および塩化カルシウム二水和物2.5gを水100mlに溶解させた水溶液を、10重量パーセント苛性ソーダ水溶液でその懸濁液のpHを1.0~2.5に調整しながら、加熱攪拌下、2時間に加える。上記の金属塩水溶液を全て加えた後、10重量パーセント苛性ソーダ水溶液を用いてさらにpHを7~10としこれらの金属の水酸化物および酸化物水化物を酸化チタン被覆雲母微粉末の表面に共沈させ、得られた生成物を分別し、水洗し、105~110℃で8時間乾燥した。この生成物を850℃で1時間焼成することによ

水洗し、105~110℃で8時間乾燥した。この生成物を850℃で1時間焼成することにより、用いた酸化鉄被覆雲母微粉末の色相に比べ青緑色の、上記金属の複合酸化物で被覆された酸化鉄被覆雲母微粉末顔料を得た。

実施例 9

水1200mlに、青色の反射色および黄色の透過色を有する酸化チタン被覆雲母微粉末 (MERCK社製 Iriodin 225) 120gを加えて調製した懸濁液を95℃に加熱し、この懸濁液に、32重量パーセント四塩化チタン水溶液98.5g、塩化コバルト六水和物31.6g、塩化マグネシウム六水和物3.5g、および塩化カルシウム二水和物2.5gを水100mlに溶解させた水溶液を、30重量パーセント炭酸カリウム水溶液でその懸濁液のpHを1.0~2.5に調整しながら、加熱攪拌下、2時間に加える。上記金属塩水溶液を全て加えた後、30重量パーセント炭酸カリウム水溶液を用いてさらにpHを7~10としこれらの金属の水酸化物、酸化物水化物および炭酸塩を酸化チタン

り、酸化チタン被覆雲母微粉末の表面がこれらの金属の複合酸化物で被覆された、光輝性を有する青緑色顔料を得た。またこの顔料は、彩度の高い赤紫色の反射色を有し、またその透過色は黄緑色を有していた。

実施例 8

水600mlに、酸化鉄被覆雲母微粉末 (MERCK社製 Iriodin 500) 60gを加えて調製した懸濁液を95℃に加熱し、この懸濁液に、32重量パーセント四塩化チタン水溶液100g、塩化コバルト六水和物12g、塩化マグネシウム六水和物1.6g、および塩化カルシウム二水和物1.2gを水100mlに溶解させた水溶液を、10重量パーセント苛性ソーダ水溶液でその懸濁液のpHを1.0~2.5に調整しながら、加熱攪拌下、2時間に加える。上記の金属塩水溶液を全て加えた後、10重量パーセント苛性ソーダ水溶液を用いてさらにpHを7~10としこれらの金属の水酸化物および酸化物水化物を酸化鉄被覆雲母微粉末の表面に共沈させ、得られた生成物を分別し、

被覆雲母微粉末の表面に共沈させ、得られた生成物を分別し、水洗し、105~110℃で8時間乾燥した。この生成物を850℃で1時間焼成することにより、酸化チタン被覆雲母微粉末の表面がこれらの金属の複合酸化物で被覆された、光輝性を有する青緑色顔料を得た。またこの顔料は、彩度の高い青緑色の反射色を有し、その透過色は黄赤色を有していた。

実施例 10

水800mlに、青色の反射色および黄色の透過色を有する酸化チタン被覆雲母微粉末 (MERCK社製 Iriodin 225) 80gを加えて調製した懸濁液を95℃に加熱し、この懸濁液に、尿素45g、32重量パーセント四塩化チタン水溶液65.8g、塩化コバルト六水和物8g、塩化マグネシウム六水和物8g、および塩化カルシウム二水和物12gを水400mlに溶解させた水溶液を、10重量パーセント苛性ソーダ水溶液でその懸濁液のpHを1.0~2.5に調整しながら、加熱攪拌下、40分に加える。上記金属塩水溶液を全て加えた後、

10重量パーセント苛性ソーダ水溶液を用いてさらにpHを7~10としこれらの金属の水酸化物、酸化物水化物および炭酸塩を酸化チタン被覆雲母微粉末の表面に共沈させ、得られた生成物を分別し、水洗し、105~110℃で8時間乾燥した。この生成物を800℃で1時間焼成することにより、酸化チタン被覆雲母微粉末の表面がこれらの金属の複合酸化物で被覆された、光輝性を有する青緑色顔料を得た。またこの顔料は、彩度の高い青緑色の反射色を有し、その透過色は黄赤色を有していた。

特許出願人 メルク・ジャパン株式会社

代 理 人 弁理士 南 孝 夫

同 弁理士 川 上 宣 男



**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.